

## ハロゲン化鉛低次元結晶の励起子・励起子分子 II

上智大学理工学部

加藤ゆきこ、大橋光太郎、市井大輔、櫻田英之、江馬一弘

## Excitons and Biexcitons in Lead-Halide-Based Low-Dimensional Crystals II

Yukiko Kato, Kotaro Ohashi, Daisuke Ichii, Hideyuki Kunugita, Kazuhiro Ema

Faculty of Science &amp; Engineering, Sophia University

我々はこれまで自己組織化量子井戸物質である  $(C_6H_{13}NH_3)_2PbI_4$  において、安定な励起子・励起子分子系における非線形性の起源について研究を行ってきた。本年度は、さらにバンドギャップが大きい臭化鉛系層状ペロブスカイト化合物  $(C_4H_9NH_3)_2PbBr_4$  (以下  $C4PbBr_4$ ) において励起子分子の存在を確認し、非常に安定な励起子・励起子分子系の生成、緩和、再結合過程の解明を行っている。

Fig.1 に  $C4PbBr_4$  の単結晶 (11 K) における発光スペクトルの励起強度依存性を示す。弱励起下では 3.014 eV に自由励起子 (EX) からの発光が観測され、励起強度を強くすると、2.948 eV に EX 強度の 2 乗の励起強度依存性 (挿入図参照) を示す発光帯が観測される。これは、励起子分子から励起子へ緩和する際に放出される M 発光であると考えられ、この励起子分子束縛エネルギーは 66 meV と非常に大きいことがわかった。また、2.996 eV にも発光 (Q) が観測される。

次にストリークカメラを用いて、EX、M、Q 発光強度の時間分解測定を行った。励起強度依存性やレート方程式による解析から、EX、励起子分子 (BX)、Q の輻射寿命はそれぞれ数 ps、70 ps、10 ns 程度であることがわかった (Fig.2 参照)。また、EX、M、Q 発光すべてにおいて観測される数百 ps の成分は、励起子・励起子分子系が準平衡状態に達した後の成分であると考えられ、寿命の遅い Q 準位が励起子分子生成、緩和、再結合過程に大きく寄与していると推測される。

また、 $(C_nH_{2n+1}NH_3)_2PbBr_4$  の有機層にナフタレンを導入すると、無機井戸層の励起子の発光ではなく、ナフタレンからの著しい燐光発光増強が観測される。この原因は、無機井戸層の励起子状態からナフタレン励起三重項状態へのエネルギー移動であり、このエネルギー移動のメカニズムは、電子交換相互作用による三重項-三重項エネルギー移動であることを昨年度報告した (Fig.2 枠の中)。さらにレート方程式の解析から、井戸層の寿命の遅い成分の存在が、エネルギー移動に寄与していることがわかり、励起子状態ではなく Q 準位からエネルギー移動が起こっていることがわかった。このエネルギー移動のメカニズムや、励起子分子生成への Q 準位の寄与から、寿命の遅い Q 準位は三重項励起子状態とするのが最も妥当であると考えられる。

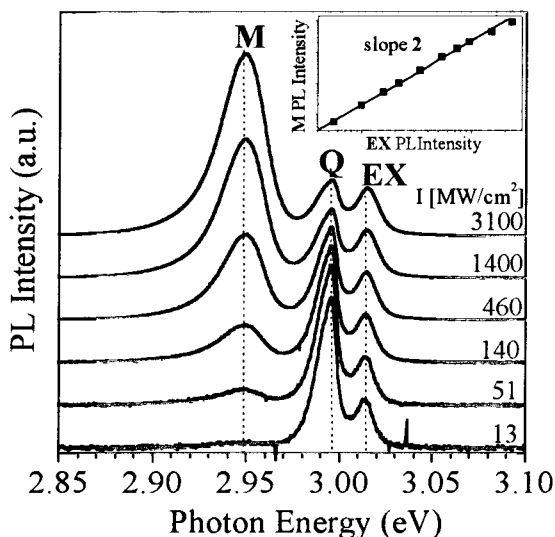


Fig.1 発光スペクトルの励起強度依存性

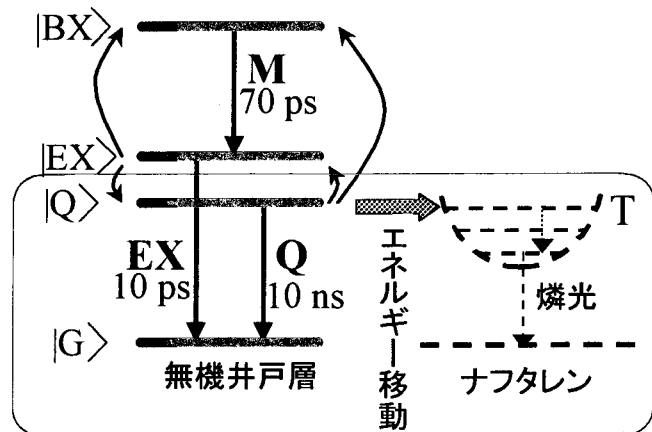


Fig.2 エネルギー準位図